

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
Please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

(51)

Int. Cl.:

C 08 g, 9/10

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES



PATENTAMT

(52)

Deutsche Kl.:

39 b5, 9/10

Behördeneigentlich

(10)

(11)

(21)

(22)

(43)

Offenlegungsschrift 1907 914

Aktenzeichen: P 19 07 914.2

Anmeldetag: 17. Februar 1969

Offenlegungstag: 16. Oktober 1969

Ausstellungspriorität: —

(30)

Unionspriorität

(32)

Datum: 21. März 1968

(33)

Land: Schweiz

(31)

Aktenzeichen: 4169-68

(54)

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung von ~~hochdispersen~~ ^{hochdispersen} aus vernetzten Harnstoff-Formaldehyd-Polykondensationsprodukten bestehenden Feststoffen

(61)

Zusatz zu: —

(62)

Ausscheidung aus: —

(71)

Anmelder: CIBA Aktiengesellschaft, Basel (Schweiz)

Vertreter: Zumstein, Dr. F.; Assmann, Dr. E.; Koenigsberger, Dr. R.; Holzbauer, Dipl.-Phys. R.; Patentanwälte, 8000 München

(72)

Als Erfinder benannt: Renner, Dr. Alfred, Münchenstein (Schweiz)

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): —

Dr. F. Zimblein - Dr. E. Assmann
Dr. R. Koenigsberger
Dipl. Phys. R. Holzbauer
Patentanwälte
München 2, Bräuhausstraße 4/III

1907914

CIBA AKTIENGESELLSCHAFT, BASEL (SCHWEIZ)

Case 6418/K
Deutschland

Verfahren zur Herstellung von hochdispersen, aus vernetzten
Harnstoff-Formaldehyd-Polykondensationsprodukten bestehenden
Feststoffen.

In den Britischen Patentschriften Nos. 1'043'437 und
1'071'307 wurden Verfahren zur Herstellung "feinteiliger, un-
löslicher und unschmelzbarer Feststoffe mit grosser innerer
Oberfläche" auf Basis von Melamin und Formaldehyd beschrieben.
Solche synthetische, hochdisperse Feststoffe eignen sich unter
anderem zur Verstärkung von Natur- und Synthesekautschuk. Ge-

909842/1632

genüber den üblicherweise zu diesem Zweck verwendeten hochdispersen Füllstoffen auf Kohlenstoff- oder Kieselsäurebasis zeichnen sie sich durch einige vorteilhafte, im praktischen Gebrauch wertvolle Eigenschaften wie gute mechanische Eigenschaften, kleine bleibende Deformationen verbunden mit niedriger Dichte und heller Farbe der Gummi-Vulkanisate aus. Kautschukmischungen und Vulkanisate, die diese neue Art von hochdispersen Füllstoffen enthalten, sind in der Britischen Patentschrift Nr. 1'029'441 beschrieben.

Einer breiteren Verwendung in der Technik stehen allerdings die Herstellungskosten dieser neuen hochdispersen Füllstoffe entgegen, die erheblich über jenen von Aktivruß oder von kolloidaler Kieselsäure liegen. Dies aus zwei Gründen: Erstens ist eines der für diese Stoffe verwendeten Ausgangsmaterialien, das Melamin, relativ teuer; zweitens sind zum Teil hohe Verdünnungen und lange Verweilzeiten in den Reaktionsgefäßen oder kostspielige Entwässerungsmethoden, wie azeotropes Abdestillieren von Wasser notwendig, um die besondere Struktur dieser Stoffe zu erhalten. Weicht man von diesen eher aufwendigen Verfahrensbedingungen ab, dann erhält man stark agglomerierte oder gar zusammengesinterte Produkte mit einer sehr kleinen spezifischen Oberfläche, deren Verstärkungsvermögen in Elastomeren gering ist.

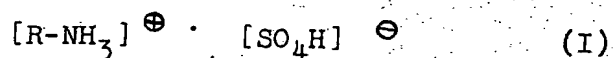
In der oben erwähnten Britischen Patentschrift Nr. 1'029'441 wird unter anderem auch die Verstärkung von Naturkautschuk mit einem hochdispersen vernetzten Harnstoff-Formaldehyd-Kondensationsprodukt sowie auch dessen Herstellung beschrieben, die aber nur mit sehr schlechter Ausbeute (41% bezogen auf eingesetzten Harnstoff und Formaldehyd) gelingt. Des weiteren werden dort bei der Herstellung des hochdispersen Harnstoff-Formaldehyd-Kondensationsproduktes grosse Mengen von Hilfsstoffen, wie Aethanolamin-phosphat benötigt, die nicht wiedergewonnen werden können; die zuletzt erforderliche azeotrope Trocknung dieses gelierten Poly-Kondensationsproduktes ist wegen seiner grossen spezifischen Oberfläche mit grossen Verlusten an azeotroper Hilfsflüssigkeit verbunden. Versuche zur Verbesserung der Ausbeute und zur Vermeidung der azeotropen Trocknung schlugen fehl.

Ueberraschenderweise wurde aber gefunden, dass man hochdisperse, vernetzte Feststoffe aus Harnstoff und Formaldehyd, die sich unter anderem als verstärkende Füllstoffe für Elastomere, wie Natur- oder Synthesekautschuk eignen, mit guten Ausbeuten herstellen kann, ohne die oben erwähnten verfahrenstechnischen Schwierigkeiten und ökonomischen Nachteile in Kauf nehmen zu müssen, wenn man ein Vorkondensat aus Harnstoff und Formaldehyd in Gegenwart eines Schutzkolloides mit Hilfe von Sulfaminsäure (Amidosulfosäure, $\text{H}_2\text{N}-\text{SO}_3\text{H}$) oder einem Ammoniumhydrogensulfat geliert. Wenn man für die Herstellung des Vorkon-

909842/1632

densates mehr als 1 Mol Formaldehyd pro Mol Harnstoff zur Reaktion bringt, dann erhält man nach dem Trocknen und Zerkleinern des Gels ein aus annähernd kugelförmigen Teilchen mit mittlerem Durchmesser unterhalb 1000 Å bestehendes Produkt..

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit ein Verfahren zur Herstellung hochdispenser, aus annähernd kugelförmigen Teilchen mit einem mittleren Durchmesser, kleiner als 1000 Å bestehenden Feststoffen aus vernetzten Harnstoff-Formaldehyd-Polykondensationsprodukten, welches dadurch gekennzeichnet ist, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates aus Harnstoff und Formaldehyd in Gegenwart eines Schutzkolloids durch Zusatz von Sulfaminsäure oder eines wasserlöslichen Ammoniumhydrogensulfats der allgemeinen Formel



worin R ein Wasserstoffatom oder einen die Wasserlöslichkeit nicht beeinträchtigenden organischen Rest, wie insbesondere einen Alkyl-, Cycloalkyl-, Hydroxyalkyl, Aralkyl oder Arylrest bedeutet, in ein vernetztes Gel überführt, wobei das Verhältnis Formaldehyd: Harnstoff spätestens im Moment der Gelbildung grösser als 1 ist, und dass man das erhaltene Gel zerkleinert,

trocknet und desagglomeriert.

Man kann gewünschtenfalls zunächst ein Vorkondensat aus Harnstoff und weniger als der total erforderlichen Menge CH_2O (z.B. 1 Mol CH_2O pro 1 Mol Harnstoff) herstellen, und die restliche Menge Formaldehyd erst bei der anschliessenden Gelierung zusetzen.

Zweckmässig verwendet man jedoch bereits bei der Herstellung des Vorkondensates mehr als 1 Mol, und vorzugsweise ungefähr 1,5 Mol Formaldehyd pro 1 Mol Harnstoff. Die Verwendung von mehr als 2 Mol Formaldehyd pro 1 Mol Harnstoff ist zwar nicht inoperativ, jedoch unwirtschaftlich.

Das Vorkondensat stellt man in zweckmässiger Weise im pH-Bereich zwischen 6 und 9 und im Temperaturbereich zwischen 40 und 100°C her. Die Reaktionszeit soll zweckmässig so lange sein, dass der grösste Teil des Formaldehyds (ungefähr 90%) Gelegenheit hat, mit dem Harnstoff zu reagieren, jedoch nicht so lange, dass die Wassertoleranz des Vorkondensats so klein wird, dass dessen homogene Vermischung mit der Säurelösung nicht mehr möglich ist. Relativ hohe Temperaturen und relativ tiefe pH-Werte führen in kürzerer Zeit zu dem gewünschten Polykondensationsgrad. Zweckmässigerweise wird das Schutzkolloid dem Vorkondensat in irgend einem Stadium seiner Herstellung zugesetzt; man kann jedoch ohne Nachteil eigens

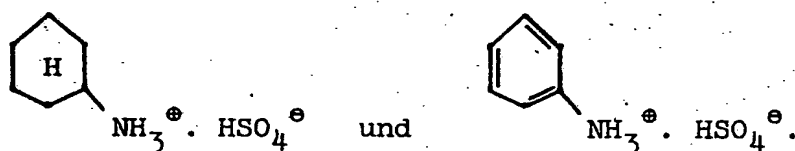
eine Lösung des Schutzkolloids bereiten und diese der fertigen Vorkondensatlösung erst vor der Gelbildung zusetzen. Unter Schutzkolloiden werden in diesem Zusammenhang wasserlösliche makromolekulare Stoffe verstanden, die die Viskosität wässriger Lösungen stark erhöhen. Typische Vertreter dieser Verbindungsklasse sind das Natriumsalz der Carboxymethylcellulose, Methyl-, Aethyl- und β -Hydroxyaethylcellulose, Polyvinylalkohol, wasserlösliche Polymere und Copolymere der Acryl- oder der Methacrylsäure. Die Konzentrationen, in denen diese Stoffe ihre beste Wirkung entfalten, hängen von ihrer chemischen Struktur und von ihrem Molekulargewicht ab. Sie sind im allgemeinen in Mengen zwischen 0,1 und 10%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 5% bezogen auf das Gewicht von Harnstoff und Formaldehyd, wirksam:

Die Gelbildung wird durch Vermischen des Vorkondensats mit einer Lösung von Amidosulfosäure oder von gegebenenfalls substituierten Ammoniumhydrogensulfaten bei Temperaturen zwischen der Raumtemperatur und 100°C herbeigeführt. Wenn Säurestärke und Temperatur richtig gewählt werden, setzt die Gelbildung innerhalb weniger Sekunden ein. Man hat daher für intensive, kurzzeitige Vermischung von Vorkondensat und Säurelösung zu sorgen; Eine kontinuierliche Vermischung der beiden Lösungen ist hiezu besonders zweckmässig. Die Gelbildung ist schwach exotherm - die Wärmekapazität des Reaktionsgemisches reicht jedoch gut aus, auch unter adiabatischen Bedingungen die Reaktionswärme aufzunehmen, die in der Regel einen Temperaturan-

909842/1632

stieg von 10-15°C verursacht.

Beispiele für gegebenenfalls substituierte Ammoniumhydrogensulfate der Formel (I) sind neben $\text{NH}_3^+ \cdot \text{HSO}_4^-$;
 $\text{CH}_3\text{-NH}_3^+ \cdot \text{HSO}_4^-$; $\text{C}_2\text{H}_5\text{NH}_3^+ \cdot \text{HSO}_4^-$; $\text{HO-CH}_2\text{CH}_2\text{-NH}_3^+ \cdot \text{HSO}_4^-$;



Wo die Basizität der Aminkomponente zu gross ist, ist es zweckmässig, etwas überschüssige Schwefelsäure der Ammoniumsalzlösung zuzusetzen.

Trotz seines hohen Wassergehaltes ist das Gel formbeständig. Es ist leicht zu zerkleinern, beispielsweise mittels eines Extruders oder eines Schneidegranulators. Nach der Zerkleinerung kann das Gel in wässriger Aufschlämmung neutral gestellt werden. Es wird abfiltriert oder abzentrifugiert und gegebenenfalls gewaschen, um anorganisches Salz zu entfernen. Nach der Trocknung und dem Erkalten desagglomeriert man das feste, unschmelzbare und unlösliche Polykondensationsprodukt mit Hilfe einer Prall- oder Strahlmühle.

An der Polykondensationsreaktion kann man - sei es im Stadium der Vorkondensation oder der Gelbildung - ausser Harnstoff noch andere Verbindungen teilnehmen lassen, die im Stande sind, mit Formaldehyd Polykondensationsharze zu bilden. Als

909842/1632

solche kommen in erster Linie Aminoplastbildner wie Thioharnstoff, Dicyandiamid, Melamin, Benzoguanamin und Anilin in Frage; jedoch eignen sich auch Phenol und Alkylphenole hierzu. Mit dieser Art von Modifizierung hat man es in der Hand, die Struktur und die Oberflächenreaktivität dieser hochdispersen, vernetzten Polykondensationsprodukte zu verändern und sie auf diese Weise spezifischen Verwendungszwecken anzupassen.

In den nachfolgenden Beispielen bedeuten Teile Gewichtsteile und Prozente Gewichtsprozente.

Herstellungsbeispiele

Beispiel 1

6,3 Teile einer hochmolekularen Natrium-carboxymethylcellulose werden in 315 Teilen Wasser gelöst, 450 Teile 30%ige wässrige Formaldehydlösung zugegeben, mit verdünnter Natronlauge pH = 7 eingestellt und auf 70°C erwärmt. Man gibt 180 Teile Harnstoff zu und kondensiert 3 Stunden bei pH = 7 und 70°C.

Das so erhaltene Vorkondensat wird auf 50°C gekühlt und rasch mit einer Lösung von 9,7 Teilen Sulfaminsäure in 300 Teilen Wasser vermischt, die ebenfalls auf 50°C erwärmt worden war. Die Gelbildung setzt nach 12 Sekunden ein, die Temperatur steigt auf 60-65°C. Man belässt das Gel während 3 Stunden bei dieser Temperatur, zerkleinert es in einem Schneidegranulator, schlämmt es in der 1-2fachen Menge Wasser auf, zentrifugiert ab, wäscht und trocknet es bei 80°C im Luftstrom. Nach Erkalten desagglomeriert man das Produkt durch Vermahlen in einer Stiftmühle.

Man erhält 230 Teile eines weissen Pulvers mit einem Schüttgewicht (englisch = "bulk density") von etwa 77 g/Liter und mit einem spezifischen Gewicht von 1,46 g/cm³. Die elektro-

nenmikroskopische Abbildung zeigt annähernd kugelförmige Einzelteilchen mit einem mittleren Durchmesser von 400 Å. Die spezifische Oberfläche beträgt 72 m²/g.

Beispiel 2

Man löst 11,5 Teile Polyvinylalkohol in 380 Teilen Wasser, erwärmt auf 70°C und setzt 465 Teile 30%ige wässrige Formaldehydlösung, 162 Teile Harnstoff und 37,7 Teile Melamin zu, wobei man pH = 7 und Temperatur = 70°C möglichst konstant hält. Man kondensiert 3 Stunden bei pH = 7 und 70°C. Man kühlt auf 50°C und vermischt das Vorkondensat rasch mit einer Lösung von 2,2 Teilen n-Butylamin und 9,8 Teilen Schwefelsäure in 300 Teilen Wasser von 50°C.

Das Produkt wird nach 3 Stunden so aufgearbeitet, wie dies im Beispiel 1 beschrieben ist. Ausbeute: 218 Teile; Schüttgewicht: 218 g/Liter, spezifische Oberfläche: 30 m²/g.

Beispiel 3

1286 Teile einer 1%igen Lösung von Natriumcarboxymethylcellulose in Wasser, 900 Teile 30%ige wässrige Formaldehydlösung und 324 Teile Harnstoff werden während 3 Stunden

909842/1632

ORIGINAL INSPECTED

bei pH = 7 und 70°C kondensiert.

- a) Eine Hälfte dieses Vorkondensats wird mit einer Lösung von 28,2 Teilen Phenol und 9,7 Teilen Sulfaminsäure in 300 Teilen Wasser bei 70°C rasch vermischt und gelieren gelassen. Nach der Aufarbeitung gemäss den Anweisungen des Beispiels 1 erhält man 236 Teile eines weissen Pulvers mit einem Schüttgewicht von 54 g/Liter und einer spezifischen Oberfläche von 41 m²/g. Die mittlere Teilchengrösse beträgt etwa 450 Å.
- b) Die zweite Hälfte des Vorkondensats wird mit einer Lösung von 60,6 Teilen Anilinhydrogensulfat in 270 Teilen Wasser geliert. Nach der Aufarbeitung gemäss den Anweisungen des Beispiels 1 erhält man 243 Teile eines blass rosa gefärbten Pulvers mit einem Schüttgewicht von 50 g/Liter und einer spezifischen Oberfläche von 22,3 m²/g. Die mittlere Teilchengrösse beträgt etwa 700 Å.

Beispiel 4

90 Teile Harnstoff und 150 Teile 30%ige wässrige Formaldehydlösung werden 3 Stunden bei 50°C und pH 7,0 vorkondensiert. Dieses Vorkondensat wird unter Rühren bei 70°C eingetropft in eine Lösung von 2,7 Teilen Polyvinylalkohol, 7,28 Teilen Sulfaminsäure und von 2,5 Teilen Formaldehyd in

909842/1632

480 Teilen Wasser.

Man lässt 6 Stunden bei 70°C unter Rühren nachreagieren, kühlt ab, stellt auf pH = 7,5 ein, filtriert und wäscht. Nach dem Trocknen und Desagglomerieren wie im Beispiel 1 erhält man 101 Teile eines weissen Pulvers mit einem Schüttgewicht von 217 g/Liter und einer spezifischen Oberfläche von 302 m²/g. Die elektronenmikroskopische Abbildung zeigt eine so starke Teilchenagglomeration, dass die Bestimmung des mittleren Teilchendurchmessers nicht mehr möglich ist.

Anwendungsbeispiel

Im Werner-Pfleiderer-Mischer wird eine Mischung hergestellt aus

	Teile
Styrol-Butadienkautschuk	
[Mischpolymerisat aus 76,5 % Butadien.	
und 23,5 % Styrol]	100
Stearinsäure	1,5
Zinkoxid	5
hochdisperses Pulver aus vernetztem Harn-	
stoff-Formaldehyd-polykondensationsprodukt	
gemäss Beispiel 1	50

"Circolight process oil" ⁺)	5
Diaethylenglykol	3
Schwefel	2
Mercapto-benzothiazolyl-disulfid	1,2
Di-tetramethylthiuram-disulfid	0,2
"Nonox WSL" ⁺⁺)	1,0

Nach der Vulkanisation während 40 Minuten bei 145°C wurden folgende Eigenschaften an den erhaltenen hellfarbigen Prüfkörpern nach ASTM bestimmt:

Bruchdehnung	700 %
Zugfestigkeit	151 kg/cm ²
Spannungswert bei 300 % Dehnung	51,4 kg/cm ²
Shore-Härte A	81 %
Kerbzähigkeit	35,5 kg/cm
Rückprallelastizität	33 %

⁺) geschützte Markenbezeichnung für Weichmacheröl der Sun Oil Co. (naphthenische Petrolfraktion mit einem Flammpunkt von 165°C, die 19 % aromatische C-Atome, 40 % naphthenische C-Atome und 41 % paraffinische C-Atome enthält)

⁺⁺) geschützte Markenbezeichnung für Antioxydants der I.C.I. (substituiertes Phenol)

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung hochdisperser, aus annähernd kugelförmigen Teilchen mit einem mittleren Durchmesser kleiner als 1000 Å bestehenden Feststoffen aus vernetzten Harnstoff-Formaldehyd-Polykondensationsprodukten, dadurch gekennzeichnet, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates aus Harnstoff und Formaldehyd in Gegenwart eines Schutzkolloids durch Zusatz von Sulfaminsäure oder eines wasserlöslichen Ammoniumhydrogensulfats der Formel



worin R ein Wasserstoffatom oder einen die Wasserlöslichkeit nicht beeinträchtigenden organischen Rest, wie insbesondere einen Alkyl-, Cycloalkyl-, Hydroxyalkyl-, Aralkyl oder Arylrest bedeutet, in ein vernetztes Gel überführt, wobei das Verhältnis Formaldehyd: Harnstoff spätestens im Moment der Gelbildung grösser als 1 ist, und dass man das erhaltene Gel zerkleinert, trocknet und desagglomert.

2. Verfahren nach Patentanspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates verwendet, welches durch Vorkondensation von mehr als 1 Mol Formaldehyd mit 1 Mol Harnstoff erhalten wurde.

909842/1632

ORIGINAL INSPECTED

3. Verfahren nach Patentanspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates verwendet, welches durch Vorkondensation von ungefähr 1,5 Mol Formaldehyd mit 1 Mol Harnstoff erhalten wurde.

4. Verfahren nach Patentanspruch 1-3, dadurch gekennzeichnet, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates verwendet, welches durch Vorkondensation der Reaktionskomponenten im pH-Bereich 6 bis 9 und im Temperaturbereich 40-100°C hergestellt wurde.

5. Verfahren nach Patentansprüchen 1-4, dadurch gekennzeichnet, dass man die wässrige Lösung eines Vorkondensates verwendet, welches durch Umsetzung der Reaktionskomponenten während einem so bemessenen Zeitintervall erhalten wurde, dass zwar der grösste Teil des Formaldehyds mit dem Harnstoff reagiert hat, jedoch die Wasserverträglichkeit des Vorkondensates noch genügend gross ist, um seine homogene Vermischung mit einer Lösung der Sulfaminsäure oder des Ammonium-hydrogen-sulfates zu ermöglichen.

6. Verfahren nach Patentansprüchen 1-5, dadurch gekennzeichnet, dass man als Schutzkolloide Natrium-Carboxymethylcellulose, Methyl-, Aethyl- oder β -Hydroxyäthylcellulose, Polyvinylalkohol oder wasserlösliche Polymere oder Copolymere der Acryl- oder Methacrylsäure verwendet.

7. Verfahren nach Patentansprüchen 1-6, dadurch gekennzeichnet, dass man das Schutzkolloid in einer Menge von 0,1 bis 10%, vorzugsweise 0,5 bis 5%, bezogen auf das Gewicht von Harnstoff und Formaldehyd, einsetzt.
8. Verfahren nach Patentansprüchen 1-7, dadurch gekennzeichnet, dass man das Schutzkolloid der wässrigen Lösung des Vorkondensates vor oder während der Vorkondensationsreaktion zusetzt.
9. Verfahren nach Patentansprüchen 1-8, dadurch gekennzeichnet, dass man die Gelbildung durch Vermischen der wässrigen Lösung des Vorkondensates mit einer wässrigen Lösung der Sulfaminsäure oder des Ammonium-hydrogen-sulfats im Temperaturbereich 20-100°C, vorzugsweise ca. 50-70°C, durchführt.
10. Verfahren nach Patentansprüchen 1-9, dadurch gekennzeichnet, dass man das erhaltene Gel nach dem Zerkleinern in Wasser aufschlämmt, dann entwässert und schliesslich desagglomeriert.
11. Verfahren nach Patentansprüchen 1-10, dadurch gekennzeichnet, dass man das Trockene Polykondensationsprodukt mittels einer hochtourigen Stiftmühle desagglomeriert.
12. Verfahren nach Patentansprüchen 1-11, dadurch gekennzeichnet, dass man bei der Herstellung des Vorkondensates aus Harnstoff und Formaldehyd ausser dem Harnstoff an der Vorkondensationsreaktion noch mindestens eine andere Verbindung teilnehmen lässt, die befähigt ist, mit Formaldehyd Polykondensa-

tionsharze zu bilden, wie insbesondere Thioharnstoff, Dicyandiamid, Melamin, Benzoguanamin, Anilin, Phenol oder Alkylphenole.

13. Verfahren nach Patentansprüchen 1-12, dadurch gekennzeichnet, dass man der wässrigen Lösung des Vorkondensates aus Harnstoff und Formaldehyd vor der Gelierung mindestens eine Verbindung zusetzt, die befähigt ist, mit Formaldehyd Polykondensationsharze zu bilden, wie insbesondere Harnstoff, Thioharnstoff, Dicyandiamid, Melamin, Benzoguanamin, Anilin, Phenol oder Alkylphenole.

14. Verwendung der nach dem Verfahren gemäss Patentansprüchen 1-13 hergestellten hochdispersen Feststoffe als verstärkende Füllstoffe für Elastomere, wie Naturkautschuk oder Synthesekautschuk.